



## DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITE DE COOPÉRATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(51) Classification internationale des brevets <sup>7</sup> : <b>G01T 3/00</b>		A1	(11) Numéro de publication internationale: <b>WO 00/62099</b>
			(43) Date de publication internationale: 19 octobre 2000 (19.10.00)
(21) Numéro de la demande internationale: PCT/FR00/00848 (22) Date de dépôt international: 5 avril 2000 (05.04.00) (30) Données relatives à la priorité: 99/04396 8 avril 1999 (08.04.99) FR (71) Déposants (pour tous les Etats désignés sauf US): COMMIS-SARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE [FR/FR]; 31-33, Rue De La Fédération, F-75752 Paris 15ème (FR). COM-PAGNIE GENERALE DES MATIERES NUCLEAIRES [FR/FR]; 2, Rue Paul Dautier, F-78140 Vélizy-Villacoublay (FR). (72) Inventeurs; et (75) Inventeurs/Déposants (US seulement): LYOUSSI, Abdallah [FR/FR]; Quartier de la "Négresse", Résidence Fougères N°3, F-04100 Manosque (FR). PASQUALI-BARTHELEMY, Raymond [FR/FR]; 5, Place d'Engauch, F-04100 Manosque (FR). PAYAN, Emmanuel [FR/FR]; Résidence de la Petite Négresse, Bât. 2, Montée des Cigales, F-04100 Manosque (FR). RAOUX, Anne-Cécile [FR/FR]; 7, Chemin des Jardins, F-83560 Vinon-sur-Verdon (FR).		(74) Mandataire: WEBER, Etienne; Brevatome, 3, Rue Du Docteur Lancereaux, F-75008 Paris (FR). (81) Etats désignés: JP, KR, RU, US, brevet européen (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). Publiée Avec rapport de recherche internationale.	

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR ANALYSING RADIOACTIVE OBJECTS USING NEUTRONS

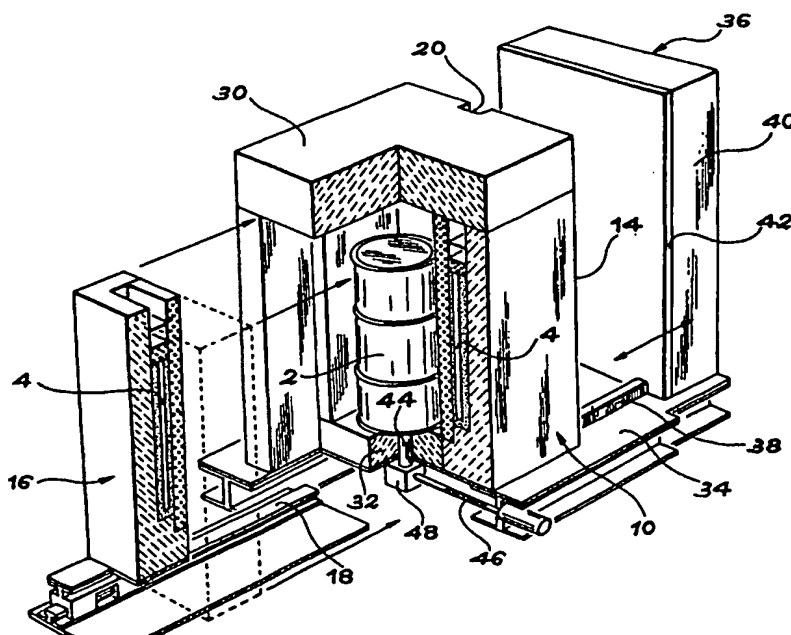
(54) Titre: PROCEDE ET DISPOSITIF D'ANALYSE D'OBJETS RADIOACTIFS AU MOYEN DES NEUTRONS

## (57) Abstract

The invention concerns a method and a device for analysing an object (2), in particular a package of radioactive waste, likely to contain fissile isotopes and/or fertile isotopes. The method consists: in irradiating the object with rapid thermal and epithermal neutrons resulting from a series rapid initial neutron pulses; measuring the fast and delayed neutron signals emitted by the object after each pulse and cumulating said signals; determining, on the basis of the total sum of all the signals, the contribution (Sp) of the fast neutrons derived from thermal fissions and the contribution (Sr) of the delayed signals derived from the rapid thermal and epithermal fissions; and determining the amount of each isotope from the Sp and Sr and supplementary data concerning the amounts of isotopes.

## (57) Abrégé

Selon l'invention, pour analyser un objet (2), notamment un colis de déchets radioactifs, susceptible de contenir des isotopes fissiles et/ou des isotopes fertiles, on irradie l'objet par des neutrons thermiques, épithermiques et rapides et résultant d'une suite d'impulsions initiales de neutrons rapides, on mesure les signaux neutroniques prompts et retardés émis par l'objet après chaque impulsion et on cumule ces signaux, on détermine, à partir de la somme de tous les signaux, la contribution (Sp) des neutrons prompts issus des fissions thermiques et la contribution (Sr) des neutrons retardés issus des fissions thermiques, épithermiques et rapides, et on détermine la quantité de chaque isotope à partir de Sp et Sr et d'informations supplémentaires, relatives aux quantités des isotopes.



### UNIQUEMENT A TITRE D'INFORMATION

Codes utilisés pour identifier les Etats parties au PCT, sur les pages de couverture des brochures publiant des demandes internationales en vertu du PCT.

AL	Albanie	ES	Espagne	LS	Lesotho	SI	Slovénie
AM	Arménie	FI	Finlande	LT	Lituanie	SK	Slovaquie
AT	Autriche	FR	France	LU	Luxembourg	SN	Sénégal
AU	Australie	GA	Gabon	LV	Lettonie	SZ	Swaziland
AZ	Azerbaïdjan	GB	Royaume-Uni	MC	Monaco	TD	Tchad
BA	Bosnie-Herzégovine	GE	Géorgie	MD	République de Moldova	TG	Togo
BB	Barbade	GH	Ghana	MG	Madagascar	TJ	Tadjikistan
BE	Belgique	GN	Guinée	MK	Ex-République yougoslave de Macédoine	TM	Turkménistan
BF	Burkina Faso	GR	Grèce	ML	Mali	TR	Turquie
BG	Bulgarie	HU	Hongrie	MN	Mongolie	TT	Trinité-et-Tobago
BJ	Bénin	IE	Irlande	MR	Mauritanie	UA	Ukraine
BR	Brésil	IL	Israël	MW	Malawi	UG	Ouganda
BY	Bélarus	IS	Islande	MX	Mexique	US	Etats-Unis d'Amérique
CA	Canada	IT	Italie	NE	Niger	UZ	Ouzbékistan
CF	République centrafricaine	JP	Japon	NL	Pays-Bas	VN	Viet Nam
CG	Congo	KE	Kenya	NO	Norvège	YU	Yougoslavie
CH	Suisse	KG	Kirghizistan	NZ	Nouvelle-Zélande	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	République populaire démocratique de Corée	PL	Pologne		
CM	Cameroun	KR	République de Corée	PT	Portugal		
CN	Chine	KZ	Kazakhstan	RO	Roumanie		
CU	Cuba	LC	Sainte-Lucie	RU	Fédération de Russie		
CZ	République tchèque	LI	Liechtenstein	SD	Soudan		
DE	Allemagne	LK	Sri Lanka	SE	Suède		
DK	Danemark	LR	Libéria	SG	Singapour		
EE	Estonie						

## PROCÉDE ET DISPOSITIF D'ANALYSE D'OBJETS RADIOACTIFS AU MOYEN DES NEUTRONS

## DESCRIPTION

## DOMAINE TECHNIQUE

La présente invention concerne un procédé  
5 et un dispositif d'analyse d'objets radioactifs qui  
utilisent une mesure neutronique de ces objets.

L'invention permet d'analyser ces derniers  
de manière non destructive (c'est-à-dire en  
garantissant l'intégrité physique des objets) en  
10 effectuant des mesures actives (c'est-à-dire contrôlées  
par un rayonnement extérieur) sur ces objets.

L'invention s'applique notamment au  
contrôle de processus de traitement de produits  
radioactifs et à la caractérisation du contenu de colis  
15 de déchets radioactifs. Ces colis sont des conteneurs,  
généralement en béton ou en acier, dans lesquels sont  
placés les déchets radioactifs éventuellement  
préalablement enrobés dans une matrice.

L'invention se rapporte plus  
20 particulièrement au dosage de la matière fissile et/ou  
de la matière fertile contenues dans ces colis de  
déchets radioactifs, pour connaître de manière non  
destructive les quantités de certains éléments  
chimiques présents dans ces déchets.

25 Elle trouve une application directe dans  
les installations utilisant les techniques non  
destructives actives de dosage. En particulier, le

dosage de la matière fissile et/ou de la matière fertile permet de quantifier la masse de combustible résiduel.

## ÉTAT DE LA TECHNIQUE ANTÉRIEURE

5                    Dans le but de connaître de manière non destructive la quantité de certains isotopes fissiles contenus dans un colis de déchets, plusieurs méthodes de mesure ont été étudiées parmi lesquelles on trouve la technique d'interrogation neutronique par le biais  
10 de neutrons de 14 MeV produits par un générateur approprié.

                  Plus particulièrement, la mesure des neutrons prompts (« prompt neutrons ») et des neutrons retardés (« delayed neutrons »), produits par fission  
15 thermique de la matière fissile présente dans le colis de déchets, est écrite dans le document US-A-4483816 (J.T. Caldwell et al.).

                  De manière générale, l'interrogation d'un objet par un flux pulsé de neutrons thermiques  
20 (« thermal neutrons ») est utilisée pour identifier la présence de matière fissile au sein de cet objet. Une telle méthode est, le plus souvent, utilisée pour mesurer les isotopes fissiles que sont l'uranium 235, le plutonium 239 et le plutonium 241. L'interprétation  
25 des mesures nécessite néanmoins une connaissance préalable de la composition isotopique de la matière fissile.

                  Avec la technique décrite dans le document mentionné plus haut, les principaux isotopes fissiles

ainsi caractérisés sont l'uranium 233, l'uranium 235 et le plutonium 239. La quantification des différents isotopes est réalisée grâce à l'exploitation des signaux prompts et retardés, issus des neutrons thermiques. On obtient alors deux équations linéaires. Une troisième équation est obtenue par la mesure de coïncidences sur les neutrons passifs (c'est-à-dire émis naturellement par la matière). Il est donc possible de calculer les différentes masses, présentes dans l'objet à mesurer, des isotopes fissiles précédemment cités, moyennant la connaissance de plusieurs coefficients d'étalonnage (préalablement calculés).

Néanmoins, cette technique ne donne aucune information concernant la présence et la quantité de matière fertile, telle que l'uranium 238, dans l'objet à analyser.

#### EXPOSÉ DE L'INVENTION

La présente invention a pour but de remédier à cet inconvénient.

La caractérisation de matières fissile et fertile nécessite l'utilisation d'un flux interrogateur de neutrons thermiques, épithermiques (« epithermal ») et rapides (« fast »), le seuil de fission de l'uranium 238 se situant à une énergie d'environ 1 MeV. De plus la contribution de l'uranium 238 au signal neutronique mesuré n'est exploitable que pour les neutrons retardés émis par les fragments de fission de l'uranium 238. Ainsi, le signal prompt mesuré correspond aux neutrons

issus de fission thermique (matière fissile) et le signal retardé aux neutrons issus de fission thermiques et rapides (matières fissile et fertile).

La présente invention associe justement  
5 l'interrogation thermique, épithermique et rapide à la détection des neutrons prompts et retardés afin de caractériser la matière fissile et/ou la matière fertile susceptibles d'être présentes dans un objet à mesurer.

10 De façon précise, la présente invention concerne un procédé d'analyse d'un objet, notamment d'un colis de déchets radioactifs, susceptible de contenir une matière fissile ou une matière fertile ou les deux, la matière fissile comprenant M isotopes  
15 fissiles et la matière fertile comprenant N isotopes fertiles, M et N étant des nombres entiers au moins égaux à 1, ce procédé étant caractérisé en ce que :

- on irradie l'objet par un flux neutronique formé de neutrons thermiques, épithermiques et rapides et  
20 résultant d'une suite d'impulsions initiales de neutrons rapides, les neutrons thermiques provoquant des fissions dans la matière fissile et les neutrons épithermiques et rapides provoquant des fissions dans la matière fissile et dans la matière fertile,
- 25 - on mesure les signaux neutroniques prompts et retardés émis par l'objet après chaque impulsion et on cumule ces signaux pour obtenir, après la dernière impulsion, la somme de tous les signaux,
- on détermine, à partir de cette somme, la  
30 contribution  $S_p$  des neutrons prompts issus des fissions thermiques et la contribution  $S_r$  des

neutrons retardés issus des fissions thermiques, épithermiques et rapides,

- on exprime  $S_p$  et  $S_r$  comme des combinaisons linéaires des quantités respectives des  $M+N$  isotopes, les coefficients de ces combinaisons linéaires étant  
5 préalablement déterminés par étalonnage, et
- on détermine la quantité de chacun des  $M+N$  isotopes à partir de  $S_p$  et  $S_r$  ainsi exprimés et d'au moins  $M+N-2$  informations supplémentaires, relatives aux  
10 quantités des  $M+N$  isotopes.

Ces informations supplémentaires sont par exemple des corrélations entre les quantités des  $M+N$  isotopes.

Selon un mode de mise en œuvre particulier  
15 du procédé objet de l'invention, les matières fissile et fertile comprennent l'uranium 235, l'uranium 238, le plutonium 239 et le plutonium 241.

La présente invention concerne aussi un dispositif d'analyse d'un objet, notamment d'un colis  
20 de déchets radioactifs, susceptible de contenir une matière fissile ou une matière fertile ou les deux, la matière fissile comprenant  $M$  isotopes fissiles et la matière fertile comprenant  $N$  isotopes fertiles,  $M$  et  $N$  étant des nombres entiers au moins égaux à 1, ce  
25 dispositif étant caractérisé en ce qu'il comprend :

- des moyens d'irradiation de l'objet par un flux neutronique formé de neutrons thermiques, épithermiques et rapides et résultant d'une suite d'impulsions initiales de neutrons rapides, les  
30 neutrons thermiques provoquant des fissions dans la matière fissile et les neutrons épithermiques et

rapides provoquant des fissions dans la matière fissile et dans la matière fertile,

- des moyens de comptage de neutrons, prévus pour mesurer les signaux neutroniques prompts et retardés  
5 émis par l'objet après chaque impulsion, et
- des moyens de traitement des signaux ainsi mesurés, prévus pour cumuler ces signaux et obtenir, après la dernière impulsion, la somme de tous les signaux, déterminer, à partir de cette somme, la contribution  
10  $S_p$  des neutrons prompts issus des fissions thermiques et la contribution  $S_r$  des neutrons retardés issus des fissions thermiques, épithermiques et rapides, et déterminer la quantité de chacun des M+N isotopes à partir de  $S_p$  et  $S_r$  et  
15 d'au moins M+N-2 informations supplémentaires, relatives aux quantités des M+N isotopes, en exprimant  $S_p$  et  $S_r$  comme des combinaisons linéaires de ces quantités, les coefficients de ces combinaisons linéaires étant préalablement  
20 déterminés par étalonnage.

Selon un mode de réalisation préféré du dispositif objet de l'invention, les moyens d'irradiation comprennent :

- au moins une source de neutrons rapides fonctionnant  
25 en mode pulsé et
- des moyens de thermalisation de ces neutrons rapides.

De préférence, les moyens de thermalisation comprennent une enceinte qui comporte une zone centrale  
30 destinée à recevoir l'objet et dont au moins trois côtés sont délimités par une épaisseur de matériau



modérateur, la source de neutrons étant disposée sur un quatrième côté de cette enceinte et les moyens de comptage de neutrons étant disposés sur les trois côtés, entre la zone centrale et l'épaisseur de  
5 matériau modérateur, une épaisseur de matériau multiplicateur étant prévue entre la zone centrale et la source de neutrons ainsi qu'entre cette zone centrale et les moyens de comptage de neutrons.

Chaque moyen de comptage de neutrons peut  
10 être de plus entouré par une épaisseur de matériau neutrophage.

Chaque moyen de comptage de neutrons peut également être entouré d'un matériau modérateur.

Le dispositif objet de l'invention peut  
15 comprendre en outre une paroi en matériaux neutrophage et modérateur qui délimite le quatrième côté de l'enceinte, l'épaisseur correspondante de matériau multiplicateur étant comprise entre cette paroi et la zone centrale.

20 Le dispositif objet de l'invention peut comprendre en outre des moyens de rotation de l'objet dans la zone centrale de l'enceinte.

#### BRÈVE DESCRIPTION DES DESSINS

La présente invention sera mieux comprise à  
25 la lecture de la description d'exemples de réalisation donnés ci-après, à titre purement indicatif et nullement limitatif, en faisant référence aux dessins annexés sur lesquels :

- la figure 1 illustre schématiquement des étapes d'un procédé conforme à l'invention,
- la figure 2 est une vue en perspective écorchée schématique d'un mode de réalisation particulier du dispositif objet de l'invention dans une position ouverte,
- la figure 3 est une vue de dessus en coupe schématique du dispositif de la figure 2 dans une position fermée,
- la figure 4 est une vue en perspective en coupe schématique d'un autre mode de réalisation particulier du dispositif objet de l'invention, et
- la figure 5 est une vue de dessus en coupe schématique du dispositif de la figure 4.

#### EXPOSÉ DÉTAILLÉ DE MODES DE RÉALISATION PARTICULIERS

Un procédé conforme à l'invention utilise un flux neutronique interrogateur à la fois thermique, épithermique et rapide dans le but de provoquer des fissions dans un objet susceptible de contenir une matière fissile ou une matière fertile ou les deux. Ce flux neutronique peut être obtenu en utilisant au moins un générateur de neutrons fonctionnant en mode pulsé et produisant, par exemple par la réaction de fusion D-T, des neutrons rapides dont l'énergie vaut par exemple environ 14 MeV. Une cellule de thermalisation adaptée permet, quant à elle, d'obtenir un flux neutronique à la fois thermique, épithermique et rapide. D'une part, les neutrons thermiques provoquent des fissions dans la

matière fissile et, d'autre part, les neutrons épithermiques et rapides provoquent des fissions à la fois dans la matière fissile et dans la matière fertile.

5 De plus, l'utilisation d'une méthode de mesure, dans laquelle on réalise une sommation du signal après chaque impulsion neutronique, permet de distinguer sur un même signal la contribution des neutrons prompts issus des fissions thermiques et la  
10 contribution des neutrons retardés issus des fissions thermiques, épithermiques et rapides. En effet, seules les fissions thermiques participent au signal prompt puisque les fissions épithermiques et rapides sont instantanées, leur contribution étant donc noyée dans  
15 la partie du signal correspondant aux neutrons interrogateurs.

Il convient de noter que l'on peut utiliser plus d'une source de neutrons pulsée pour augmenter le flux neutronique et donc la sensibilité des mesures.

20 Le nombre d'impulsions de neutrons rapides peut être très grand et valoir par exemple plusieurs millions. Cela dépend de la précision et de la limite de détection recherchées.

Le principe d'un procédé conforme à  
25 l'invention, utilisant une source pulsée de neutrons rapides et une mesure séquentielle, est schématiquement illustré par la figure 1.

On irradie donc l'objet à analyser, par exemple un colis de déchets radioactifs, par des  
30 neutrons thermiques, épithermiques et rapides résultant

des impulsions de la source (et obtenus comme on le verra plus loin dans la description des figures 2 à 5).

Sur la figure 1, le temps  $t$  est porté en abscisse et le nombre de coups par seconde  $C(s^{-1})$  est  
5 porté en ordonnée (avec une échelle logarithmique).

On a représenté les impulsions neutroniques  $I_1$  (première impulsion),  $I_2$ ,  $I_3$  ...  $I_{n-1}$  et  $I_n$  (dernière impulsion). La période du générateur est notée  $T$ . La fin de la dernière impulsion a lieu à un  
10 instant noté  $T_i$ . On voit aussi le signal dû à une seule impulsion, noté  $S_1$ , et les signaux intégrés respectivement dus à deux impulsions ( $S_2$ ), à trois impulsions ( $S_3$ ) ... à  $n-1$  impulsions ( $S_{n-1}$ ) et à  $n$  impulsions ( $S_n$ ).

15 On mesure donc les signaux neutroniques prompts, tels que  $sp$ , et retardés, tels que  $sr$ , émis après chaque impulsion de la source et l'on cumule ces signaux. A partir du signal intégré  $S_n$  on détermine la contribution  $Sp$  des neutrons prompts issus des fissions  
20 thermiques et la contribution  $Sr$  des neutrons retardés issus des fissions thermiques, épithermiques et rapides.

En une seule mesure, il est ainsi possible d'obtenir deux informations  $Sp$  et  $Sr$  sur le combustible  
25 résiduel se trouvant dans le colis.

Selon l'invention, on couple ces résultats à au moins deux autres informations telles que, par exemple, des corrélations reliant les masses des isotopes recherchés et obtenus par des codes de calcul  
30 associés au retour d'expérience des usines de retraitement du combustible.

À titre d'exemple, on suppose que le colis contient de façon résiduelle de l'uranium 235, de l'uranium 238, du plutonium 239 et du plutonium 241. On peut alors écrire l'ensemble de ces informations sous la forme, par exemple, du système d'équations suivant :

$$S_p = a_1 m(^{235}\text{U}) + a_2 m(^{238}\text{U}) + a_3 m(^{239}\text{Pu}) + a_4 m(^{241}\text{Pu})$$

$$S_r = b_1 m(^{235}\text{U}) + b_2 m(^{238}\text{U}) + b_3 m(^{239}\text{Pu}) + b_4 m(^{241}\text{Pu})$$

$$R_1 = \frac{m(^{235}\text{U})}{m(^{238}\text{U})}$$

$$R_2 = \frac{m(^{241}\text{Pu})}{m(^{239}\text{Pu})}$$

10 Avec :

$S_p$  : signal issu des neutrons prompts des fissions thermiques (en coups/s),

$S_r$  : signal issu des neutrons retardés des fissions thermiques, épithermiques et rapides (en coups/s),

15  $R_1$  : corrélation entre la masse  $m(^{235}\text{U})$  de l'isotope 235 de l'uranium et la masse  $m(^{238}\text{U})$  de l'isotope 238 de l'uranium,

$R_2$  : corrélation entre la masse  $m(^{239}\text{Pu})$  de l'isotope 239 du plutonium et la masse  $m(^{241}\text{Pu})$  de l'isotope 241 du  
20 plutonium,

$a_i$  et  $b_i$  (i allant de 1 à 4) : coefficients d'étalonnage en coups.s<sup>-1</sup>.g<sup>-1</sup>, obtenus avec un objet connu (les masses étant exprimées en grammes).

Le coefficient d'étalonnage  $a_2$  est nul, puisque la matière fertile, en l'occurrence  $^{238}\text{U}$ , ne participe pas au signal mesuré issu des neutrons prompts.

La résolution du système permet d'obtenir les masses recherchées.

L'intérêt de ce procédé conforme à l'invention réside dans le fait que l'on peut « interroger » simultanément la matière fissile et la matière fertile présentes dans l'objet à mesurer à l'aide d'une ou de plusieurs sources pulsées de neutrons rapides, par exemple un ou plusieurs générateurs pulsés de neutrons de 14 MeV.

De par sa conception (des exemples seront donnés par la suite), le dispositif utilisé pour mettre en œuvre ce procédé permet de disposer de flux thermiques, épithermiques et rapides tout en accentuant la composante rapide.

Le contraste entre la matière fissile et la matière fertile est ainsi amélioré.

Par ailleurs, la mise en œuvre d'une méthode d'acquisition séquentielle associée améliore de façon notable la sensibilité de la mesure du signal retardé, remédiant ainsi à la faible statistique des neutrons retardés de fission. De plus, l'association d'informations complémentaires comme, par exemple, des corrélations faisant intervenir les rapports massiques, molaires, atomiques ou autres, des différents isotopes recherchés, permet de quantifier séparément chacun des isotopes fissiles et fertiles présents dans les déchets. Cette quantification de chaque isotope est donc obtenue à la suite d'une seule et unique mesure neutronique sur l'objet analysé.

Le dispositif conforme à l'invention, dont la figure 2 est une vue en perspective écorchée et la figure 3 une vue de dessus en coupe, est destiné à

caractériser un objet comme par exemple un conteneur de déchets radioactifs 2.

Ce dispositif comprend :

- des moyens d'irradiation du conteneur 2 par un flux de neutrons thermiques, épithermiques et rapides,
- des moyens 4 de comptage des neutrons permettant de mesurer des signaux neutroniques prompts et retardés émis par le conteneur après chaque impulsion et
- des moyens 6 de traitement des signaux ainsi mesurés, permettant de cumuler ces signaux, de déterminer, à partir de la somme de ces signaux, la contribution  $S_p$  des neutrons prompts issus des fissions thermiques et la contribution  $S_r$  des neutrons retardés issus des fissions thermiques, épithermiques et rapides, et de déterminer la masse de chacun des isotopes fissiles et fertiles des déchets comme on l'a vu plus haut.

Les moyens d'irradiation comprennent un générateur 8 de neutrons rapides, fonctionnant en mode pulsé, et une enceinte 10 de thermalisation de ces neutrons rapides, permettant d'obtenir le flux de neutrons thermiques, épithermiques et rapides.

Cette enceinte comprend une zone centrale 12 destinée à recevoir le conteneur 2. Cette zone centrale a une forme sensiblement carrée et elle est délimitée par une paroi 14 en un matériau modérateur, par exemple le graphite.

Une partie 16 de cette paroi est mobile -elle est par exemple montée sur des rails 18 comme on le voit sur la figure 2- pour permettre l'introduction du conteneur dans la zone centrale.

Sur la figure 2, l'enceinte est ouverte alors qu'elle est fermée sur la figure 3 (lorsque le conteneur est irradié par les neutrons).

La partie de la paroi 14 située en regard de la partie mobile 16, comporte un espace 20 dans lequel est logé le générateur de neutrons 8.

Les moyens de comptage de neutrons sont des blocs de détection neutronique 4 prévus dans la partie mobile 16 de la paroi 14 et dans les deux parties de cette paroi qui sont adjacentes à cette partie mobile et situées en regard l'une de l'autre.

Un élément 22 en matériau multiplicateur, par exemple du plomb, est interposé entre le générateur et la zone centrale 12. De même un autre élément 24 en ce matériau multiplicateur est interposé entre chaque groupe de blocs de détection 4 et cette zone centrale.

De plus, chaque bloc de détection 4 est entouré par une couche 26 de matériau neutrophage comme par exemple le cadmium et contient des compteurs de neutrons, par exemple des détecteurs  $^3\text{He}$ , entourés d'un autre matériau modérateur 28 comme par exemple le polyéthylène.

L'enceinte est fermée à sa partie supérieure par un couvercle 30 en graphite. Elle est fermée à sa partie inférieure par une base 32 également en graphite. De plus cette enceinte repose sur un socle 34 par exemple en acier.

Le dispositif de la figure 2 comprend en outre une paroi 36, mobile grâce à des rails 38 prévus sur le socle 34, pour pouvoir être approchée ou au contraire éloignée de la partie de la paroi 14 où se



trouve le générateur 8. Cette paroi mobile 36 est espacée de cette partie dans le cas de la figure 2 alors qu'elle est placée au contact de cette partie dans le cas de la figure 3.

5                    Cette paroi mobile 36 est faite de matériaux neutrophage et modérateur : elle est par exemple composée d'un élément 40 en graphite, revêtu d'une couche 42 de carbure de bore en regard de la partie de la paroi 14 où se trouve le générateur.

10                   On précise que les neutrons rapides émis par le générateur 8 en direction de la paroi mobile 36 sont thermalisés par l'élément 40 en graphite et absorbés par la couche 42 en carbure de bore et ne reviennent donc pas vers le conteneur 2. Cette paroi  
15 mobile 36 permet un réglage du flux de neutrons.

Afin d'obtenir une irradiation homogène du conteneur 2 par les neutrons, on peut prévoir (figure 2) des moyens de rotation de ce conteneur dans la zone centrale de l'enceinte. Ces moyens de rotation peuvent  
20 comprendre un plateau (non représenté) sur lequel repose le conteneur et des moyens de mise en rotation du plateau, comprenant par exemple un axe 44 rigidement solidaire de ce plateau et traversant la base 32 de l'enceinte 10 ainsi qu'un autre axe 46 mis en rotation  
25 par un moteur non représenté et mettant l'axe 44 en rotation par l'intermédiaire d'engrenages contenus dans une boîte 48.

Les détecteurs des blocs 4, qui permettent le comptage du signal prompt, et du signal retardé de  
30 fission, sont de préférence optimisés de manière connue

pour avoir une sensibilité optimale à une énergie donnée.

Ils sont bien entendu reliés à des alimentations électriques (non représentées) nécessaires à leur fonctionnement et sont également  
5 reliés aux moyens 6 de traitement des signaux, placés à l'extérieur de l'enceinte 10.

Les éléments 24 en plomb, qui sont disposés devant les blocs de détection 4, ont un rôle de  
10 protection radiologique. En effet, les conteneurs mesurés peuvent être très radioactifs et peuvent en particulier émettre un rayonnement gamma élevé. Il est alors nécessaire de protéger les compteurs afin de les utiliser dans des conditions optimales.

15 Les neutrons, qui sont issus du générateur 8 et pénètrent dans les éléments 22 et 24 en plomb, subissent des réactions du type  $(n, 2n)$ . Ceci permet d'augmenter l'intensité du flux neutronique interrogateur d'environ 60%.

20 Puis chaque neutron interrogateur peut interagir suivant deux cas de figures :

1) Le neutron est suffisamment ralenti par les matériaux modérateurs, les matériaux des structures et l'objet à mesurer lui-même, jusqu'à atteindre une  
25 énergie thermique. Il induit alors, dans l'objet à mesurer, des réactions de fission sur la matière fissile (par exemple  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ).

2) Le neutron est ralenti mais possède une énergie supérieure à environ 1 MeV. Il induit alors dans  
30 l'objet à mesurer des réactions de fission non seulement sur la matière fissile (par exemple  $^{235}\text{U}$ ,

$^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ) mais aussi sur la matière fertile (par exemple  $^{238}\text{U}$ ).

A la suite des fissions thermiques, plusieurs neutrons rapides (2 à 3 par fission en moyenne), d'une énergie moyenne de 2 MeV, sont émis instantanément : ce sont les neutrons prompts. Ils sont détectés dans les blocs 4 entourés de matériau neutrophage c'est-à-dire absorbant, comme le cadmium, ce qui les rend sensibles uniquement aux neutrons rapides. Ceci permet de s'affranchir en majeure partie du bruit de fond dû aux neutrons issus du générateur 8, qui sont thermiques à cet instant de la mesure. Le signal des neutrons prompts est néanmoins superposé à différents termes de bruit de fond, dont les principaux sont le « bruit de fond actif » (signal actif sans contaminant) et le bruit de fond dû à l'émission neutronique passive du contaminant.

La mesure des neutrons prompts ne peut pas débuter tant que les neutrons du générateur ne sont pas entièrement thermalisés, car le signal qu'ils induisent, pendant quelques centaines de microsecondes après l'impulsion du générateur, est très important. De ce fait, tous les neutrons prompts produits pendant cette première phase de la mesure, et notamment ceux issus de fissions induites par les neutrons rapides du générateur, ne sont pas détectables, car ils sont noyés dans le bruit de fond.

Le signal dû aux neutrons retardés de fission est superposé à différents bruits de fond, dont le plus important est l'émission neutronique passive du contaminant. Le signal des neutrons retardés apparaît

comme constant à l'échelle d'un cycle de mesure, de durée voisine de 10 ms, car leur délai d'émission est très grand par rapport à cette durée. En effet, ils apparaissent quelques centaines de millisecondes à  
5 quelques dizaines de secondes après la fission dont ils proviennent, à la suite de la désintégration  $\beta^-$  de certains produits de fission. Les neutrons retardés détectés sont donc issus de cycles de mesure antérieurs.

10 Les neutrons retardés issus de fissions induites par des neutrons rapides contribuent au signal neutronique retardé. En effet, puisque l'émission d'un neutron retardé est différée par rapport à la fission qui l'engendre, il est possible de détecter aussi bien  
15 des neutrons retardés issus de fissions induites par des neutrons rapides ou épithermiques ou bien par des neutrons thermiques.

Une conséquence importante est que la matière fertile (par exemple  $^{238}\text{U}$ ) contribue au signal  
20 neutronique retardé, mais pas à celui des neutrons prompts, puisque les neutrons prompts issus de fissions rapides ou épithermiques ne sont pas détectables. En fait, cet isotope a une section efficace de fission à l'énergie thermique très petite par rapport à celle des  
25 isotopes fissiles, ce qui rend sa contribution au signal des neutrons prompts totalement négligeable, puisque le spectre en énergie des neutrons interrogateurs est purement thermique lors de la mesure des neutrons prompts.

30 Cependant, la section efficace de fission de l'uranium 238 est du même ordre de grandeur que

celle des isotopes fissiles au-delà de 1 MeV. Par ailleurs, comme cet isotope peut parfois être en proportion importante dans le contaminant, il induit alors un signal retardé non négligeable par rapport à  
5 celui des isotopes fissiles.

Une méthode de comptage séquentiel est utilisée lors de l'acquisition du signal. Ainsi, les informations issues des contributions respectives des neutrons prompts et retardés au signal total auxquelles  
10 sont associées, par exemple, des corrélations telles que les rapports massiques des isotopes 235 et 238 de l'uranium, et 239 et 241 du plutonium, permettent de quantifier chacun des isotopes précédemment cités.

Un autre dispositif conforme à l'invention  
15 est schématiquement représenté sur les figures 4 et 5. La figure 4 est une vue en perspective en coupe de cet autre dispositif tandis que la figure 5 en est une vue de dessus en coupe.

Le dispositif des figures 4 et 5 comporte  
20 encore une enceinte 10 comprenant une zone centrale 12 destinée à recevoir par exemple un conteneur de déchets radioactifs 2 et délimitée par quatre parois 50 en matériau multiplicateur par exemple du plomb.

A l'extérieur de trois de ces parois et  
25 contre celles-ci sont placés des compteurs de neutrons 52 qui sont entourés d'un matériau modérateur, le polyéthylène par exemple. À l'extérieur de la quatrième paroi 50 et contre celle-ci sont placés deux générateurs pulsés de neutrons, rapides 8.

30 Comme on le voit sur la figure 5, des parois 54 en matériau modérateur, par exemple le

graphite, sont placées contre les compteurs de neutrons.

Des éléments 58 en matériau absorbant, par exemple le polyéthylène boré, recouvrent les faces de l'ensemble ainsi obtenu sauf la face où se trouvent les générateurs de neutrons. De plus, des éléments 60 en matériau modérateur, par exemple le polyéthylène, recouvrent les éléments 58 en matériau absorbant.

On voit également sur la figure 5 les moyens 6 de traitement des signaux fournis par les compteurs de neutrons 52.

Des couches (non représentées) en matériau neutrophage, par exemple le cadmium, recouvrent les détecteurs de neutrons.

Une couche d'étanchéité 62, par exemple en matière plastique, entoure les parois 50.

En revenant à la figure 4 on voit la base 64 de l'enceinte, qui est par exemple en acier. On voit aussi diverses épaisseurs de béton 66 qui entourent le dispositif.

On peut encore prévoir des moyens de rotation du conteneur, comprenant par exemple un plateau tournant 68 que l'on peut mettre en rotation par l'intermédiaire d'un mécanisme approprié 70, par l'intermédiaire d'un arbre 72 qui traverse la base 64.

La partie supérieure du dispositif des figures 4 et 5 est recouverte par une plaque d'acier 74. Celle-ci est pourvue d'une ouverture en regard de la zone centrale de l'enceinte. Cette ouverture permet de mettre en place le conteneur 2 dans cette zone et, après les mesures, de le sortir du dispositif. De plus,

cette ouverture est fermée par un couvercle 76 par exemple en acier, muni d'un système de préhension 78. Ce couvercle est prolongé vers le bas par un élément 80 en matériau modérateur, par exemple le polyéthylène.

5                    On voit aussi sur la figure 4 un mur fixe 82 en béton qui se trouve en regard des générateurs de neutrons 8 et qui est espacé de ceux-ci. Sur la face de ce mur 82, située en regard des générateurs, est fixé un moniteur de flux 84 destiné à connaître le nombre de  
10 neutrons émis par les deux générateurs de neutrons 8.

                  Pour la maintenance du dispositif des figures 4 et 5, on peut prévoir des moyens appropriés (non représentés) disposés en regard de l'autre face du mur de béton 82 et aptes à pénétrer par des ouvertures  
15 (non représentées) dans ce dispositif.

## REVENDICATIONS

1. Procédé d'analyse d'un objet (2), notamment d'un colis de déchets radioactifs, susceptible de contenir une matière fissile ou une matière fertile ou les deux, la matière fissile comprenant M isotopes fissiles et la matière fertile comprenant N isotopes fertiles, M et N étant des nombres entiers au moins égaux à 1, ce procédé étant caractérisé en ce que :
- 10 - on irradie l'objet par un flux neutronique formé de neutrons thermiques, épithermiques et rapides et résultant d'une suite d'impulsions initiales de neutrons rapides, les neutrons thermiques provoquent des fissions dans la matière fissile et les neutrons
  - 15 épithermiques et rapides provoquant des fissions dans la matière fissile et dans la matière fertile,
  - on mesure les signaux neutroniques prompts et retardés émis par l'objet après chaque impulsion et on cumule ces signaux pour obtenir, après la
  - 20 dernière impulsion, la somme de tous les signaux,
  - on détermine, à partir de cette somme, la contribution  $S_p$  des neutrons prompts issus des fissions thermiques et la contribution  $S_r$  des neutrons retardés issus des fissions thermiques,
  - 25 épithermiques et rapides,
  - on exprime  $S_p$  et  $S_r$  comme des combinaisons linéaires des quantités respectives des M+N isotopes, les coefficients de ces combinaisons linéaires étant préalablement déterminés par étalonnage, et
  - 30 - on détermine la quantité de chacun des M+N isotopes à partir de  $S_p$  et  $S_r$  ainsi exprimés et d'au moins



M+N-2 informations supplémentaires, relatives aux quantités des M+N isotopes.

2. Procédé selon la revendication 1, dans lequel ces informations supplémentaires sont des  
5 corrélations entre les quantités des M+N isotopes.

3. Procédé selon l'une quelconque des revendications 1 et 2, dans lequel les matières fissile et fertile comprennent l'uranium 235, l'uranium 238, le plutonium 239 et le plutonium 241.

10 4. Dispositif d'analyse d'un objet (2), notamment d'un colis de déchets radioactifs, susceptible de contenir une matière fissile ou une matière fertile ou les deux, la matière fissile comprenant M isotopes fissiles et la matière fertile  
15 comprenant N isotopes fertiles, M et N étant des nombres entiers au moins égaux à 1, ce dispositif étant caractérisé en ce qu'il comprend :

- des moyens (8, 10) d'irradiation de l'objet par un flux neutronique formé de neutrons thermiques, épithermiques et rapides et résultant d'une suite  
20 d'impulsions initiales de neutrons rapides, les neutrons thermiques provoquant des fissions dans la matière fissile et les neutrons épithermiques et rapides provoquant des fissions dans la matière  
25 fissile et dans la matière fertile,
- des moyens (4, 52) de comptage de neutrons, prévus pour mesurer les signaux neutroniques prompts et retardés émis par l'objet après chaque impulsion, et
- des moyens (6) de traitement des signaux ainsi  
30 mesurés, prévus pour cumuler ces signaux et obtenir, après la dernière impulsion, la somme de tous les

signaux, déterminer, à partir de cette somme, la contribution  $S_p$  des neutrons prompts issus des fissions thermiques et la contribution  $S_r$  des neutrons retardés issus des fissions thermiques, épithermiques et rapides, et déterminer la quantité de chacun des M+N isotopes à partir de  $S_p$  et  $S_r$  et d'au moins M+N-2 informations supplémentaires, relatives aux quantités des M+N isotopes, en exprimant  $S_p$  et  $S_r$  comme des combinaisons linéaires de ces quantités, les coefficients de ces combinaisons linéaires étant préalablement déterminés par étalonnage.

5. Dispositif selon la revendication 4, dans lequel les moyens d'irradiation comprennent :

- 15 - au moins une source (8) de neutrons rapides fonctionnant en mode pulsé et
- des moyens (10) de thermalisation de ces neutrons rapides.

6. Dispositif selon la revendication 5, dans lequel les moyens de thermalisation comprennent une enceinte (10) qui comporte une zone centrale (12) destinée à recevoir l'objet (2) et dont au moins trois côtés sont délimités par une épaisseur (14, 60) de matériau modérateur, la source de neutrons (8) étant disposée sur un quatrième côté de cette enceinte et les moyens (4, 52) de comptage de neutrons étant disposés sur les trois côtés, entre la zone centrale et l'épaisseur de matériau modérateur, une épaisseur de matériau multiplicateur (22/ 24 ; 50) étant prévue entre la zone centrale et la source de neutrons ainsi

qu'entre cette zone centrale et les moyens de comptage de neutrons.

7. Dispositif selon la revendication 6, dans lequel chaque moyen de comptage de neutrons est de plus entouré par une épaisseur (26) de matériau neutrophage.

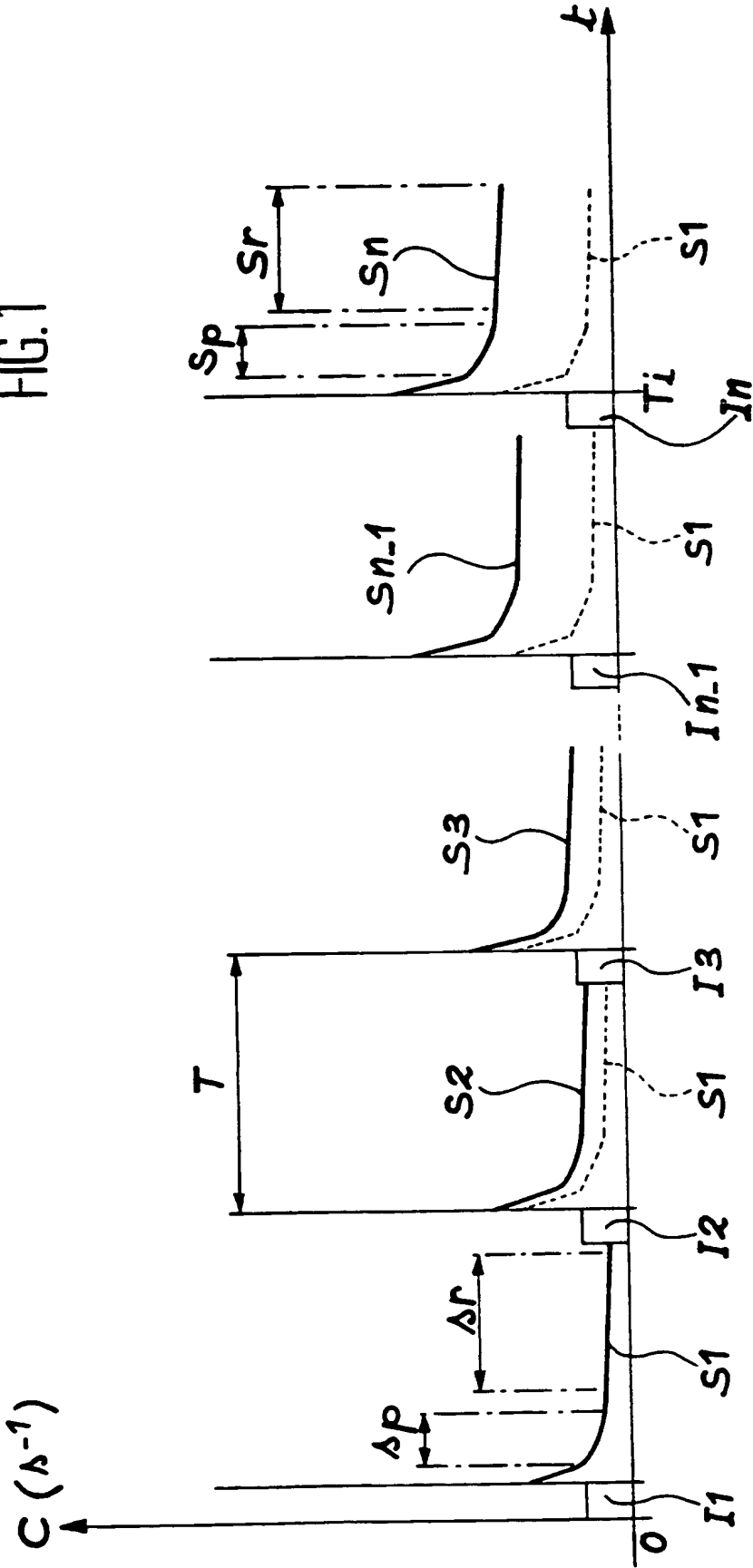
8. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 6 et 7, dans lequel chaque moyen de comptage de neutrons est également entouré d'un matériau modérateur (28).

9. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 6 à 8, comprenant en outre une paroi (36) en matériaux neutrophage et modérateur qui délimite le quatrième côté de l'enceinte, l'épaisseur correspondante (22) de matériau multiplicateur étant comprise entre cette paroi (36) et la zone centrale (12).

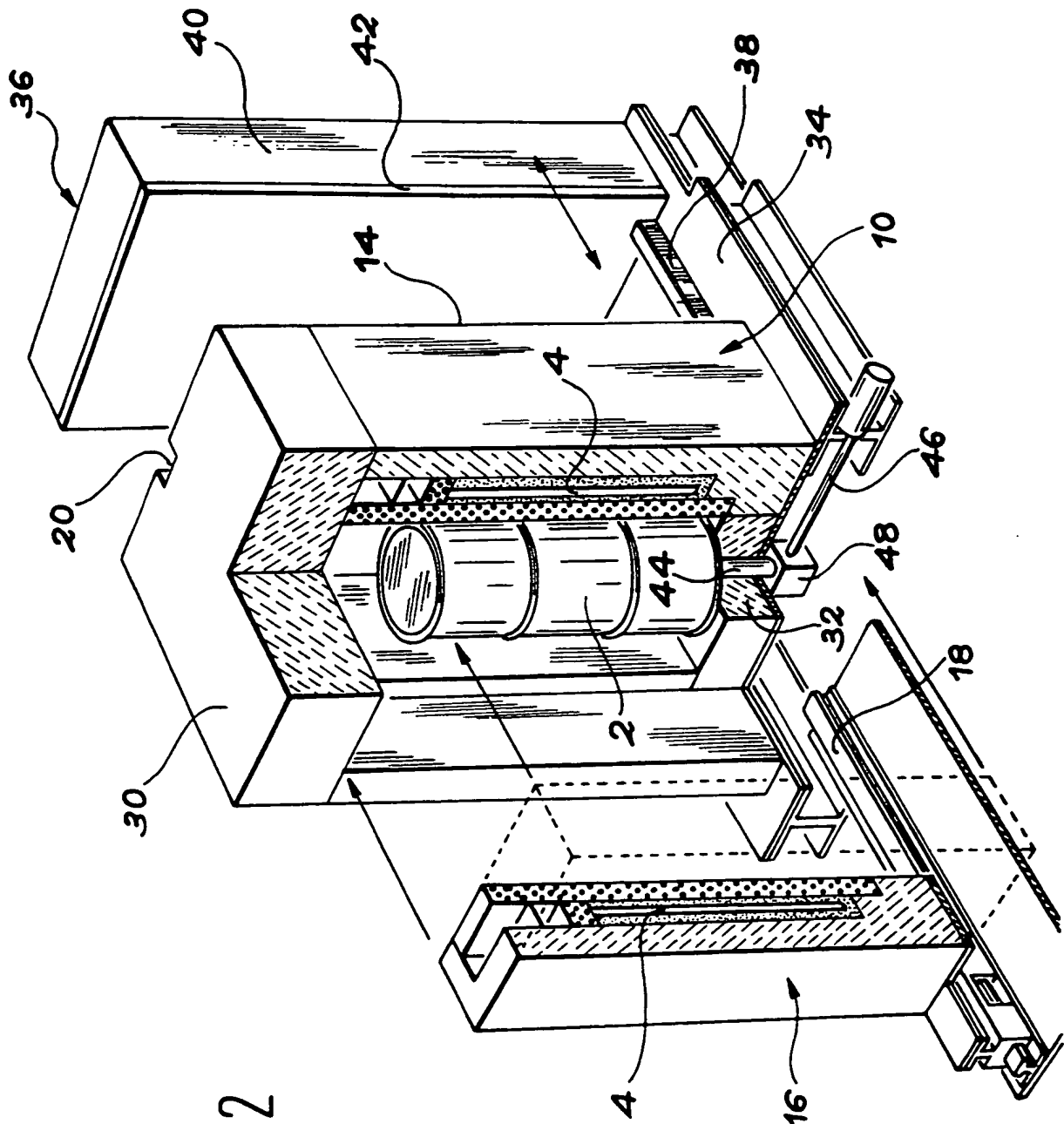
10. Dispositif selon l'une quelconque des revendications 6 à 9, comprenant en outre des moyens (46, 48 ; 68, 70, 72) de rotation de l'objet (2) dans la zone centrale de l'enceinte.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

FIG.1

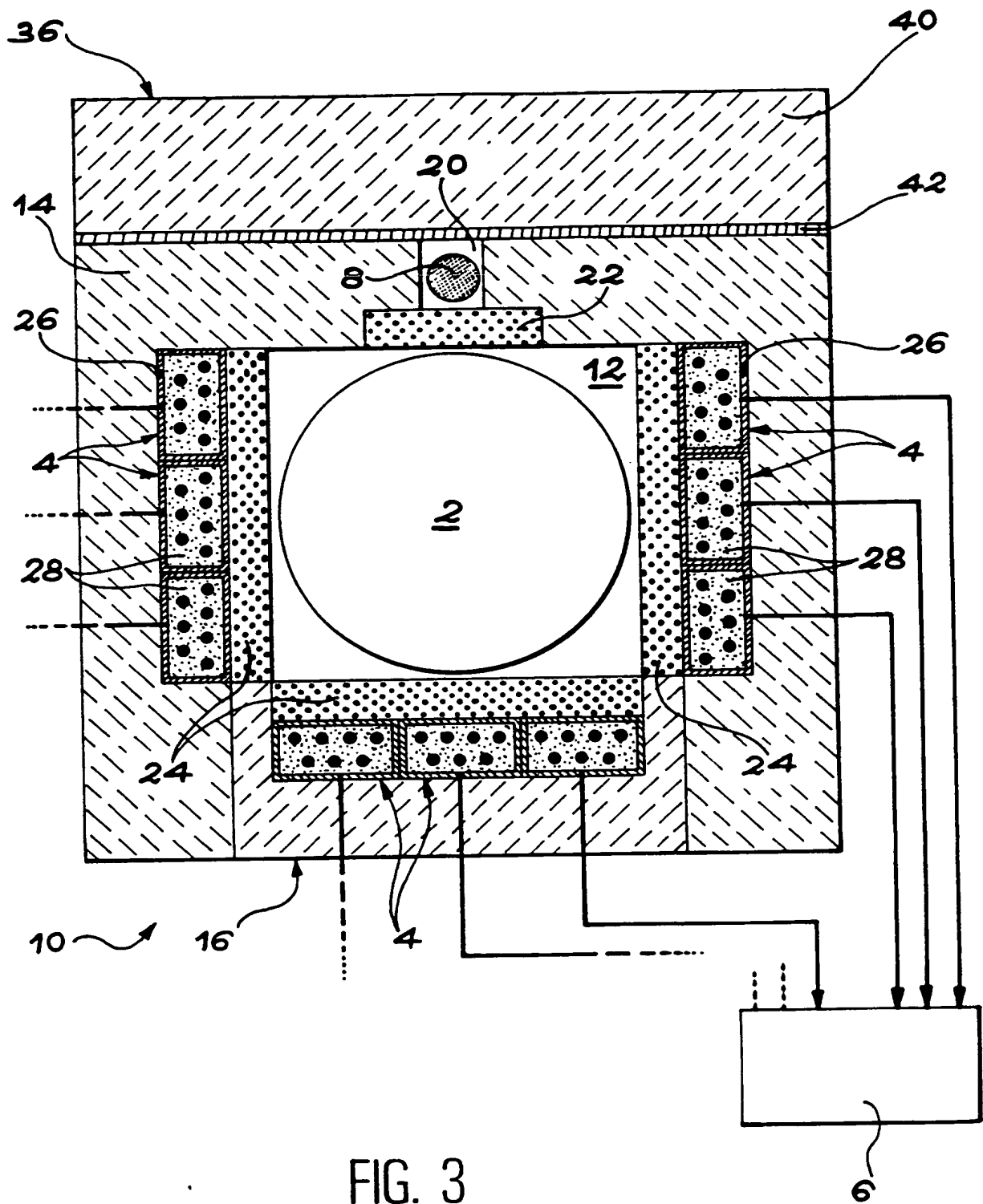


**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

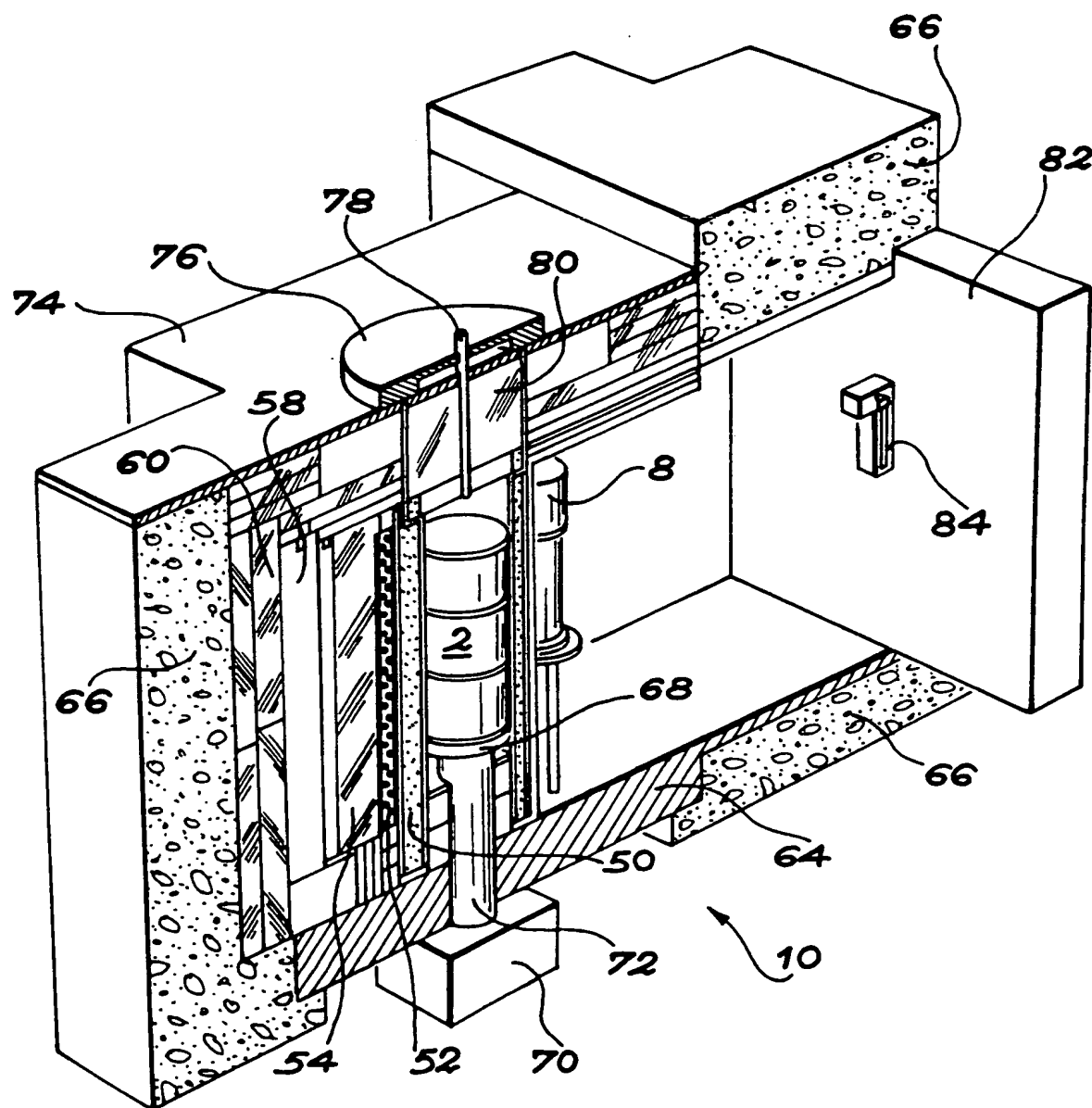


**THIS PAGE BLANK (USPTO)**





**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

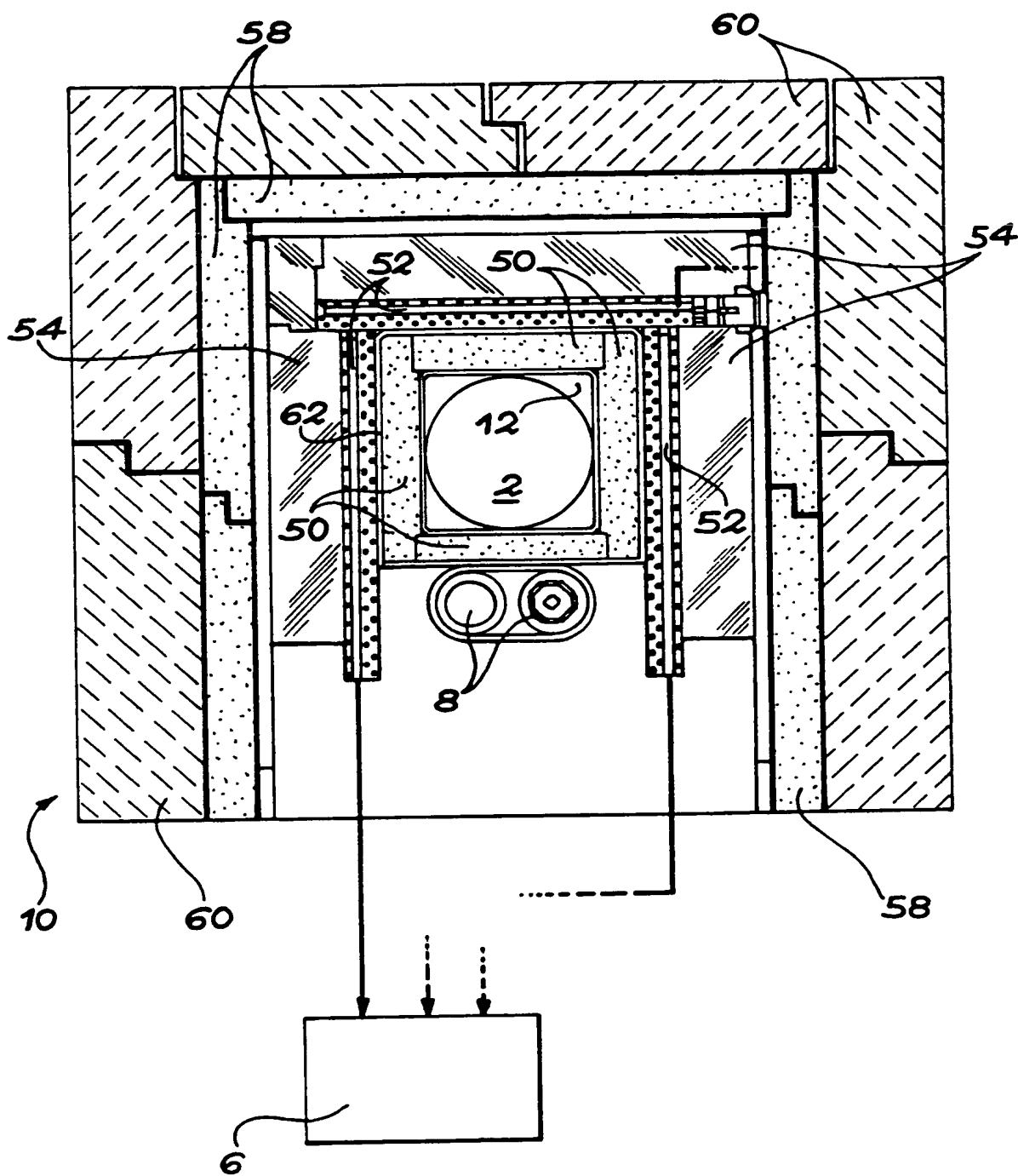


FIG. 5

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/FR 00/00848

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 G01T3/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 G01T G01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 3 222 521 A (K. EINFELD) 7 December 1965 (1965-12-07) column 1, line 41 - line 63 column 4, line 1 - line 41 column 5, line 26 - line 44; figures 7-9 ---	1, 3, 4
A	US 4 483 816 A (CALDWELL JOHN T ET AL) 20 November 1984 (1984-11-20) cited in the application column 8, line 10 - column 9, line 46; figure 1 ---	1, 3-5, 10
A	US 4 497 768 A (CALDWELL JOHN T ET AL) 5 February 1985 (1985-02-05) abstract column 7, line 24 - line 28; claim 1; figure 1 -----	1

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

12 July 2000

Date of mailing of the international search report

20/07/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Anderson, A

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Inte. lional Application No

PCT/FR 00/00848

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3222521	A	07-12-1965	NONE	
US 4483816	A	20-11-1984	NONE	
US 4497768	A	05-02-1985	NONE	



# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Der. de Internationale No

PCT/FR 00/00848

## A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE

CIB 7 G01T3/00

Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

## B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)

CIB 7 G01T G01N

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie °	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	US 3 222 521 A (K. EINFELD) 7 décembre 1965 (1965-12-07) colonne 1, ligne 41 - ligne 63 colonne 4, ligne 1 - ligne 41 colonne 5, ligne 26 - ligne 44; figures 7-9 ---	1,3,4
A	US 4 483 816 A (CALDWELL JOHN T ET AL) 20 novembre 1984 (1984-11-20) cité dans la demande colonne 8, ligne 10 - colonne 9, ligne 46; figure 1 ---	1,3-5,10
A	US 4 497 768 A (CALDWELL JOHN T ET AL) 5 février 1985 (1985-02-05) abrégé colonne 7, ligne 24 - ligne 28; revendication 1; figure 1 -----	1

☐ Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

☒ Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

### ° Catégories spéciales de documents cités:

- "A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
- "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
- "L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)
- "O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
- "P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée

- "T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention
- "X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément
- "Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier
- "&" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée

12 juillet 2000

Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale

20/07/2000

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale

Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Fonctionnaire autorisé

Anderson, A

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Devis. de Internationale No

PCT/FR 00/00848

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
US 3222521      A	07-12-1965	AUCUN	
US 4483816      A	20-11-1984	AUCUN	
US 4497768      A	05-02-1985	AUCUN	